

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-133072  
 (43)Date of publication of application : 09.05.2003

(51)Int.Cl. H05B 33/14  
 C07D471/04  
 C09K 11/06

(21)Application number : 2001-327275 (71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

MATAGA SHUNTARO  
 THIEMANN THIES  
 SOEDA YASUHIKO

(22)Date of filing : 25.10.2001

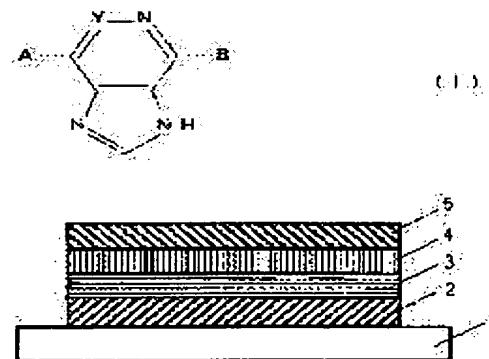
(72)Inventor : MATAGA SHUNTARO  
 THIEMANN THIES  
 SOEDA YASUHIKO  
 KANEKO SHINICHIRO  
 YATSUNAMI RYUICHI  
 KOMATSU TAKAHIRO  
 SAKAGAMI MEGUMI

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE EMITTING ELEMENT

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescence emitting element manufacturable at a low cost and capable of stably emitting continuous luminescence at high luminance for a long time.

SOLUTION: In this organic electroluminescence emitting element, an organic luminescent layer having a luminescent region is provided between two electrodes, and the organic luminescent layer contains a compound represented by the following formula (I). (In the formula, A, B express aromatic hydrocarbon group which may have a substituent, and A may be different from B. Y expresses a carbon atom which may have a substituent.).



(19) 日本国特許庁 (J.P.)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-133072

(P2003-133072A)

(43) 公開日 平成15年5月9日 (2003.5.9)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード(参考)
H 05 B 33/14		H 05 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 07 D 471/04	1 0 7	C 07 D 471/04	1 0 7 E 4 C 0 6 5
C 09 K 11/06	6 4 0	C 09 K 11/06	1 0 7 Z 6 4 0

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 20 頁)

(21) 出願番号 特願2001-327275(P2001-327275)

(22) 出願日 平成13年10月25日 (2001.10.25)

(71) 出願人 000005821  
松下電器産業株式会社  
大阪府門真市大字門真1006番地  
(71) 出願人 501415556  
又賀 駿太郎  
福岡県大野城市大池2丁目17番5号  
(71) 出願人 501415589  
ティーマン ティース  
福岡県春日市春日公園2の10春日公園住宅  
26の103  
(74) 代理人 100097445  
弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

最終頁に統ぐ

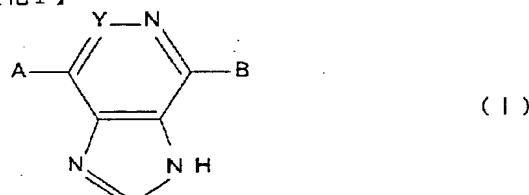
(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス発光素子

(57) 【要約】

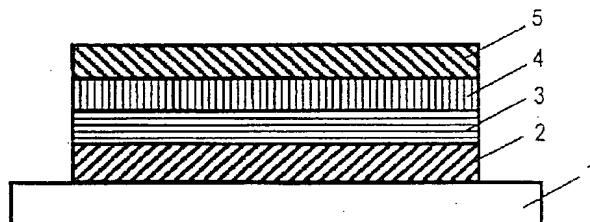
【課題】 本発明は、単一の材料のため低成本で作製でき、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能な有機エレクトロルミネッセンス発光素子の提供を目的とする。

【解決手段】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス発光素子は、2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられ、有機発光層が下記一般式(I)で表される化合物を含有する。

【化1】



(式中、A、Bは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示し、AとBは同じでも異なっていてよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

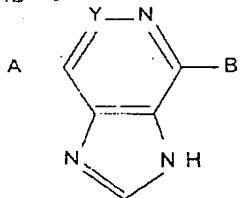


## 【特許請求の範囲】

【請求項1】2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられた有機エレクトロルミネッセンス発光素子であって、

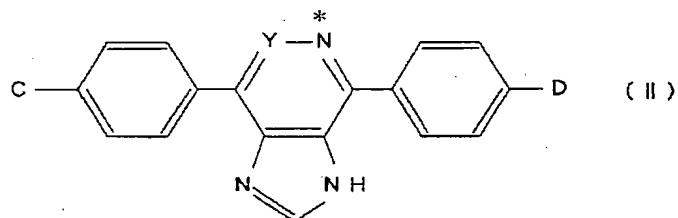
前記有機発光層が下記一般式(I)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス発光素子。

## 【化1】



(I)

10



(II)

## 【化2】

\* (式中、A、Bは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示し、AとBは同じでも異なっていてよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

【請求項2】2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられた有機エレクトロルミネッセンス発光素子であって、

前記有機発光層が下記一般式(II)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス発光素子。

(式中、C、Dは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい複素環基または置換基を有していてもよいヘテロ原子を環内に含む芳香族基を示し、CとDは同じでも異なっていてよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、種々の表示装置や表示装置の光源またはバックライト、もしくは光通信機器に使用される発光素子等に用いられる有機エレクトロルミネッセンス発光素子(以下、有機EL発光素子と略記することもある。)に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】エレクトロルミネッセンス発光素子とは、固体蛍光性物質の電界発光を利用した発光デバイスであり、現在無機形材料を発光体として用いた無機エレクトロルミネッセンス発光素子が実用化され、液晶ディスプレイのバックライトやフラットディスプレイ等への応用展開が一部で図られている。しかし、無機エレクトロルミネッセンス発光素子は発光させるために必要な電圧が100V以上と高く、しかも青色発光が難しいため、IGBTの元色によるフルカラー化が困難である。

【0003】一方、有機材料を用いたエレクトロルミネッセンス発光素子に関する研究も古くから注目され、様々な検討が行われてきたが、発光効率が非常に悪いことから本格的な実用化研究へは進展しなかった。

【0004】しかし、1987年にコグック社のC. W. Tangらにより、有機材料を正孔輸送層と発光層の2層に分けた機能分離型の積層構造を有する有機エレクトロルミネッセンス発光素子が提案され、10V以下※50

※の低電圧にもかかわらず1000cd/m<sup>2</sup>以上の緑色発光が得られることが明らかとなった[C. W. Tang and S. A. Van Slyke: App. Phys. Lett., 51 (1987) 913等参照]。

【0005】しかしながら、発光の色相は自由に選択することが出来ず、発光の輝度にも限界があった。この発表を機に有機エレクトロルミネッセンス発光素子は多くの研究者によって、研究・開発されていく。しかしRGB3色を得るための青色発光材料の研究開発がもっとも困難を極めていた。たとえば特開平4-275268に記載されているように、Yellow Greenの発光材料が開発されている。これによると緑色で高輝度が達成できているが、青色発光材料についての言及がない。また特開平4-332787に記載されているように、青色及び青緑色で発光する材料が開発されている。これによれば、高効率な青色発光材料が作製できているが寿命に関する記載がない。

【0006】ここで、従来の有機EL発光素子について説明すると、従来の有機EL発光素子は、ガラス等の基板と、基板上にスピッタリング法や抵抗加熱蒸着法等により形成されたITO等の透明な導電性膜からなる陽極と、陽極上に抵抗加熱蒸着法等により形成されたN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-ジフェニル-4,4'-ジアミン(以下、TPDと略称する。)等からなる正孔輸送層と、正孔輸送層上に抵抗加熱蒸着法等により形成された4,4'-ビス(2,2'-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下、DPVBiと略称する。)等からなる発光層と、発光層上に抵抗加熱蒸着法等により形成された100nm~300nmの膜厚の金属膜からなる陰極とを備

えている。

【0007】上記構成を有する有機EL発光素子の陽極と陰極間に直流電流を流すことにより、陽極から正孔輸送層を介して発光層に正孔が注入され、陰極から発光層に電子が注入される。発光層では正孔と電子の再結合が生じ、これに伴って励起子が発生し、この励起子が基底状態に落ちるときにそのエネルギーを光として放出すると言う原理に基づいている。

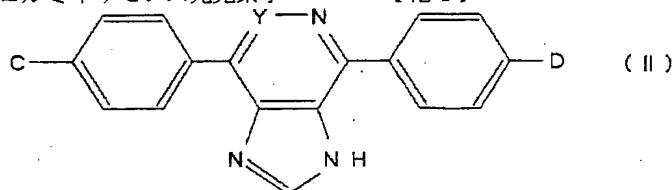
【0008】

【発明が解決しようとする課題】従来の青色発光の高効率な有機EL発光素子では、定電圧又は定電流を印加して連続的に発光させると発光輝度が経時に減衰し、連続発光時間が短い、及び色味の経時変化が生じるという課題を有していた。また、白色を得ようとする場合は青色、緑色、赤色等に発光する発光材料を組み合わせるか、青色、黄色に発光する材料の組み合わせ、または、青色発光材料からの青色発光を蛍光物質を通して色変換する等の方法が知られているが、各種発光材料を組み合わせる方法は劣化とともに発光色が変化するという課題があった。また色変換する方法は、変換効率が悪いために消費電力が大きくなるあるいは製造コストが上昇する等の問題があった。

【0009】本発明は上記従来の課題を解決するものであり、青色発光及び単一発光材料での白色発光が可能な高効率な有機エレクトロルミネッセンス発光素子であり、単一の材料のため低成本で作成でき、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能な有機エレクトロルミネッセンス発光素子の提供を目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため30に、本発明の有機エレクトロルミネッセンス発光素子<sup>\*</sup>



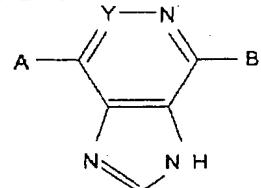
【0015】(式中、C、Dは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい複素環基または置換基を有していてもよいヘテロ原子を環内に含む芳香族基を示し、CとDは同じでも異なっていてもよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

驚くべきことに一般式(I)で表される化合物のEL発光は青色及び白色が得られ、一般式(I)で表される化合物に比べて、更に高い効率と長寿命のELデバイスが得られている。この構成により、青色発光及び白色発光の高効率な有機EL発光素子が、単一の発光材料により低成本で作成でき、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能であり、色味の経時変化がないという※50

\*は、2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられた有機エレクトロルミネッセンス発光素子であって、有機発光層が下記一般式(I)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス発光素子としたものであり、

【0011】

【化3】



(II)

10

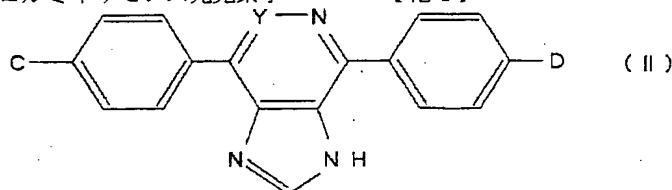
【0012】(式中、A、Bは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示し、AとBは同じでも異なっていてもよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

驚くべきことに一般式(I)で表される化合物のEL発光は青色及び白色が得られた。この構成により、青色発光及び白色発光の高効率な有機EL発光素子が、単一の発光材料により低成本で作成でき、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能であり、色味の経時変化がないという作用を有することができる。

【0013】更に、本発明の有機エレクトロルミネッセンス発光素子は、2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられた有機エレクトロルミネッセンス発光素子であって、有機発光層が下記一般式(II)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス発光素子としたものであり、

【0014】

【化4】



(III)

30

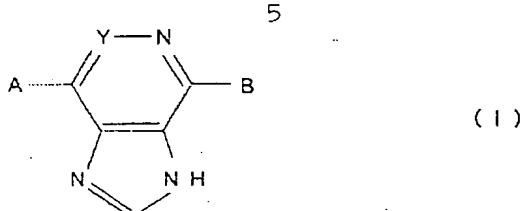
※作用を有することができる。

【0016】

40 【発明の実施の形態】請求項1に記載の発明は、2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられた有機エレクトロルミネッセンス発光素子であって、有機発光層が下記一般式(I)で表される化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス発光素子であって、

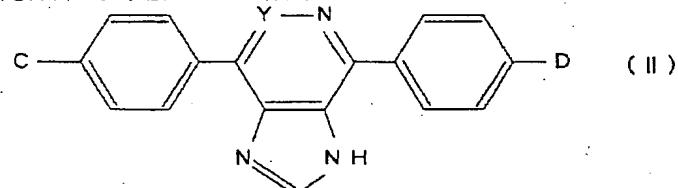
【0017】

【化5】



【0018】(式中、A、Bは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示し、AとBは同じでも異なるってしてもよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

この構成により、青色発光及び白色発光の高効率な有機EL発光素子が、単一の発光材料により低コストで作成\*



【0021】(式中、C、Dは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい複素環基または置換基を有していてもよいヘテロ原子を環内に含む芳香族基を示し、CとDは同じでも異なるってしてもよい。Yは、置換基を有していてもよい炭素原子を示す。)

この構成により、青色発光及び白色発光の非常に高効率な有機EL発光素子が、単一の発光材料により低コストで作成でき、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能であり、色味の経時変化がないという作用を有することができる。

【0022】以下、本発明の有機EL発光素子について詳細に説明する。

【0023】(実施の形態) 図1は、本発明の一実施の形態における有機EL発光素子の要部断面図であり、図1において、1は基板、2は陽極、3は正孔輸送層、4は発光層、5は陰極である。

【0024】そして、本発明の有機EL発光素子は、2つの電極(陽極2と陰極5)間に直流電流を流すことにより、陽極2から正孔輸送層3を介して発光層4に正孔が注入され、陰極5から発光層4に電子が注入される。発光層4では正孔と電子の再結合が生じ、これに伴って励起子が発生し、この励起子が基底状態に落ちるときにそのエネルギーを光として放出すると言う原理に基づく。

【0025】次に、本発明の有機EL発光素子の各構成について説明する。

【0026】まず、基板1について説明する。有機EL発光素子の基板1としては、透明あるいは半透明基板を用いることができる。なお、本発明において、透明または半透明なる定義は、有機EL発光素子による発光の視認を妨げない程度の透明性を示すものである。

\* できて、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能であり、色味の経時変化がないという作用を有することができる。

【0019】請求項2に記載の発明は、2つの電極間に、発光領域を有する有機発光層が設けられた有機EL発光素子であって、有機発光層が下記一般式(I)で表される化合物を含有することを特徴とする有機EL発光素子であって、

10 【0020】

【化6】

※【0027】基板材料としては、透明または半透明のソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英ガラス等の無機酸化物ガラス、無機フッ化物ガラス等の無機ガラス、あるいは、透明または半透明のポリエチレンテレフタート、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート、ポリエーテルスルフォン、ポリフッ化ビニル、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリアクリレート、非晶質ポリオレフィン、フッ素系樹脂等の高分子フィルム等、あるいは、透明または半透明のAs<sub>2</sub>S<sub>3</sub>、As<sub>40</sub>S<sub>10</sub>、S<sub>40</sub>Ge<sub>10</sub>等のカルコゲノイドガラス、ZnO、Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、SiO、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>、HfO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物および塗化物等の材料から適宜選択して用いることができ、複数の基板材料を積層した積層基板を用いることもできる。なお、有機EL発光素子の光の取り出しが基板1側から取り出さない場合、即ち、図1において陰極5側から取り出す場合には、基板1は不透明であってもよい。更に、この基板1の表面あるいは基板内部には、有機EL発光素子を駆動するためのトランジスタ、ダイオード、抵抗・コンデンサ・インダクタ等からなる回路を形成しても良い。

【0028】次に、陽極2について説明する。陽極2は、正孔を注入する電極であり、正孔を効率良く発光層4あるいは正孔輸送層3に注入することが必要である。陽極2としては、透明電極を用いることができる。透明電極の材料としては、インジウムスズ酸化物(ITO)、酸化スズ(SnO<sub>2</sub>)、酸化亜鉛(ZnO)等の金属酸化物、あるいは、SnO<sub>2</sub> : Sb(アンチモン)、ZnO : Al(アルミニウム)といった混合物からなる透明導電膜や、あるいは、透明度を損なわない程度の厚さのAl(アルミニウム)、Cu(銅)、Ti(チタン)、

Ag (銀) といった金属薄膜や、これら金属の混合薄膜、積層薄膜といった金属薄膜や、あるいは、ポリピロール等の導電性高分子等を用いる事ができる。また、複数の前述透明電極材料を積層することで透明電極とすることも可能であり、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタ法または電界重合法等により形成する。導電性高分子として金属酸化物微粒子、導電性樹脂微粉末等を用いる場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板上に塗布することにより形成することもできる。さらに、導電性樹脂の場合は電界重合により直接基板上に薄膜を形成することもできる。また、透明電極は、十分な導電性を持たせるため、または、基板表面の凹凸による不均一発光を防ぐために、1 nm以上の厚さにすることが望ましい。また、十分な透明性を持たせるために500 nm以下の厚さにすることが望ましい。更に、陽極2は、必要とする透明性により異なるが、透明性が必要とされる場合は、可視光または発光波長領域に対しての透過率が60%以上、好ましくは80%以上透過することが望ましい。この場合、厚みは50~10000 Å、好ましくは100~5000 Å程度である。不透明でよい場合は陽極2は基板1と同一でよい。

【0029】更に、陽極2としては、前記透明電極以外にも、Cr (クロム)、Ni (ニッケル)、Cu (銅)、Sn (錫)、W (タンゲステン)、Au (金)、Pt (白金) 等の仕事関数の大きな金属、あるいはその合金、酸化物等を用いることができ、これら陽極材料を用いた複数の材料による積層構造も用いることができる。なお、陽極2として透明電極を用いない場合には、陰極5が透明電極であればよい。この場合、陽極2は光を反射する材料で形成することが好ましい。

【0030】また、陽極2に非晶質炭素膜を設けても良い。この場合には、共に正孔注入電極としての機能を有する。即ち、陽極2から非晶質炭素膜を介して発光層4或いは正孔輸送層3に正孔が注入される。また、非晶質炭素膜は、陽極2と発光層4或いは正孔輸送層3との間にスパッタ法により形成されてなる。スパッタリングによるカーボンターゲットとしては、等方性グラファイト、異方性グラファイト、ガラス状カーボン等があり、特に限定するものではないが、純度の高い等方性グラファイトが適している。非晶質炭素膜が優れている点を具体的に示すと、理研計器製の表面分析装置AC-1を使って、非晶質炭素膜の仕事関数を測定すると、非晶質炭素膜の仕事関数は、 $W_c = 5.40 \text{ eV}$ である。ここで、一般に陽極としてよく用いられているITOの仕事関数は、 $W_{ITO} = 5.05 \text{ eV}$ であるので、非晶質炭素膜を用いた方が発光層或いは正孔輸送層3に効率よく正孔を注入できる。また、非晶質炭素膜をスパッタリング法にて形成する際、非晶質炭素膜の電気抵抗値を制御するために、窒素あるいは水素とアルゴンの混合ガス雰囲

気下、もしくは窒素ガス雰囲気下で反応性スパッタリングする。さらに、スパッタリング法などによる薄膜形成技術では、材料により若干異なるが、おおよそ膜厚を1 nm以下にすると膜が島状構造となり均質な膜が得られない。そのため、非晶質炭素膜の膜厚が1 nm以下では、効率の良い発光が得られにくく、非晶質炭素膜の効果が顕著でないこともある。また、非晶質炭素膜の膜厚を200 nm以上とすると、膜の色が黒味を帯び、有機発光層からの発光が十分に透過しなくなる。

10 10 【0031】次に、正孔輸送層3について説明する。正孔輸送層3としては、正孔移動度が高く、透明で成膜性の良いものが好ましい。また、正孔輸送層3は、電界を与えられた電極間においてアノードからの正孔を効率良く発光層4の方向に輸送することができる化合物より形成される。正孔注入輸送化合物としては陽極2からの正孔注入効率が高く、かつ、注入された正孔を効率良く輸送することができる化合物であることが必要であり、そのためにはイオン化ポテンシャルが陽極2よりも大きく、しかも正孔移動度が大きく、更に安定性に優れトップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくい化合物であることが好ましい。また発光層4で生成した励起子の電子注入層または電子輸送材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。具体的には、TPDの他、ポルフィン、テトラフェニルポルフィン銅、フタロシアニン、銅フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキサイド等のポリフィリン化合物や、1,1-ビス(4-(ジ-*P*-トリルアミノ)フェニル)シクロヘキサン、4,4',4''-トリメチルトリフェニルアミン、N,N,N',N'-テトラキス( *P*-トリル)-P-フェニレンジアミン、1-(N,N-ジ-*P*-トリルアミノ)ナフタレン、4,4'-ビス(ジメチルアミノ)-2-2'-ジメチルトリフェニルメタン、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-1,1'-4,4'-ジアミン、4'-ジアミノビフェニル、N,N'-ジフェニルカルバゾール等の芳香族第三級アミンや、*N*-ジ-*P*-トリルアミノスチルベン、4-(ジ-*P*-トリルアミノ)-4'-(4-(ジ-*P*-トリルアミノ)スチリル)スチルベン等のスチルベン化合物や、トリアゾール誘導体や、オキサジザゾール誘導体や、イミダゾール誘導体や、ポリアリールアルカン誘導体や、ピラゾリン誘導体や、ピラゾロン誘導体や、フェニレンジアミン誘導体や、アニールアミン誘導体や、アミノ置換カルボン誘導体や、オキサゾール誘導体や、スチリルアントラセン誘導体や、フルオレノン誘導体や、ヒドロゾン誘導体や、シラザン誘導体や、ポリシラン系アニリン系共重合体や、高分子オリゴマーや、スチリルアミン化合物や、芳香族ジメチリディン系化合物や、ポリ3-メチル

チオフェン等の有機材料が用いられる。また、ポリカーボネート等の高分子中に低分子の正孔輸送層用の有機材料を分散させた、高分子分散系の正孔輸送層も用いられる。

【0032】正孔輸送層3の膜厚としては、一般には50～3000Å、好ましくは300～1000Åであり、その形成方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法が用いられる。

【0033】次に、発光層4について簡単に説明するが、発光層4に含有される本発明の特徴である化合物についての詳細は後述する。発光層4は少なくともその層内に発光領域を備えた有機発光層である。図1に示すように、発光層4は正孔輸送層3の上に積層されるが、正孔輸送層3を設けない場合には、陽極2に積層される。この発光層4は陰極5からの電子を正孔輸送層3の方向へ輸送する役割と正孔と電子の再結合の際に発光をもたらす役割を同時に兼ねている。

【0034】更に、陰極5について説明する。陰極5は、電子を注入する電極であり、電子を効率良く発光層4或いは電子輸送層に注入することが必要であり、仕事関数の小さいAl(アルミニウム)、In(インジウム)、Mg(マグネシウム)、Ti(チタン)、Ag(銀)、Ca(カルシウム)、Sr(ストロンチウム)等の金属、あるいは、これらの金属の酸化物やフッ化物およびその合金、積層体等が一般に用いられる。そして、陽極2として透明電極を用いる場合には、陰極5は光を反射する材料で形成することが好ましい。

【0035】また、陰極5としては、発光層4或いは電子輸送層と接する界面に、仕事関数の小さい金属を用いた光透過性の高い超薄膜を形成し、その上部に透明電極を積層することで、透明陰極を形成することも可能である。特に仕事関数の小さなMg、Mg-Ag合金、特開平5-121172号公報記載のAl-Li合金やSr-Mg合金あるいはAl-Sr合金、Al-Ba合金等あるいはLi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/AlやLiF/Al等の積層構造は陰極材料として好適である。

【0036】更に、これら陰極5の成膜方法としては抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタ法が用いられる。

【0037】なお、陽極2及び陰極5は少なくとも一方が透明電極であればよい。更に、共に透明電極であってもよいが、光の取り出し効率を向上させるためには、一方が透明電極であれば、他方が光を反射する材料で形成することが好ましい。

【0038】また、発光層4のみの単層構造の他に、正孔輸送層3と発光層4又は発光層4と電子輸送層の2層構造や、正孔輸送層3と発光層4と電子輸送層の3層構造のいずれの構造でもよい。但し、このような2層構造又は3層構造の場合には、正孔輸送層3と陽極2が、又は電子輸送層と陰極5が接するように積層して形成され

る。

【0039】なお、電子輸送層としては、1,3-ビス(4-tert-ブチルフェニル-1,3,4-オキサジアゾリル)フェニレン(OXD-7)等のオキサジアゾール誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノン誘導体等が用いられる。

【0040】更に、有機EL発光素子を外気から遮断し、長時間安定性を保証するために必要に応じて、陰極5の上に保護膜を形成し、陽極2～陰極5の積層体を基板1上で包み込むように保護してもよい。保護膜の材料としては、SiON、SiO、SiN、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、LiF等の無機酸化物、無機塗化物、無機フッ化物からなる薄膜、更に、無機酸化物、無機塗化物、無機フッ化物等或いはそれらの混合物等からなるガラス膜、あるいは、熱硬化性、光硬化性の樹脂や封止効果のあるシラン系の高分子材料等が挙げられ蒸着やスパッタリング等もしくは塗布法により形成される。

【0041】また、本発明の有機EL発光素子は図1の層構成が逆転している構造、すなわち基板1上に陰極5、発光層4、正孔輸送層3、陽極2の順に積層することも可能であり、少なくとも一方が透明性の高い2枚の基板の間に本発明の有機EL発光素子を設けることも可能である。

【0042】本発明の有機EL発光素子の各層は、真空蒸着、CVD、スパッタリング等の乾式成膜法、或いは、スピンドルコーティング、ディッピング等の湿式成膜法いずれの方法を用いてもよい。各層の膜厚は特に限定されるものではないが、各層は最適な膜厚に設定する必要がある。膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなり、膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生し、ショートして十分な発光が得られない場合がある。各層の種類によってかなり膜厚は違うが、通常の膜厚は概ね10Å～1000Åの範囲で用いられる。

【0043】なお、湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、クロロホルム、テトラヒドロフラン、トルエン、キシレン、ジオキサン等の溶媒に溶解または分散して薄膜を形成するが、その溶媒は特に限定されるものではない。また、何れの薄膜においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用することが好ましい。このような樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルファン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリビロール等の導電性樹脂を挙げることができる。

【0044】また、本発明の有機EL発光素子は、例えば、画像を表示する表示装置として用いることができ、これら表示装置は、携帯電話、PHS、PDA等の携帯

11

情報端末のディスプレイ、テレビジョン、パソコンコンピュータ、カーナビゲーション等のディスプレイ、ステレオ、ラジオ等のAV機器のディスプレイ等に用いることができる。更に、レーザプリンタ、スキャナ等の光源としての照明装置に用いることができる。或いは、室内灯、ライトスタンド等の照明器具のような単なる光源としての照明装置として用いることもできる。

【0045】これらの中でも、有機エレクトロルミネッセンス素子の低消費電力、軽量薄型化が容易、応答速度が速い等の優位性を考慮すれば、様々な電子機器において画像を表示するディスプレイとしての表示装置や、レーザプリンタ、スキャナ等の光源としての照明装置に用いることが好ましい。

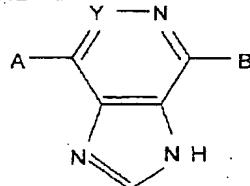
【0046】以上、本発明の実施の形態における有機エレクトロルミネッセンス発光素子の各構成について説明したが、ここで、発光層4に含有される本発明の特徴的な化合物について詳細に説明する。

【0047】まず、本発明の有機EL発光素子の発光層4に含有される下記一般式(I)で表される本発明の第1の化合物について説明する。

【0048】本発明の有機EL発光素子は、発光層4が下記一般式(I)で表される化合物を含有することを特徴とするものである。

【0049】

【化7】



(I)

10

20

30

【0050】一般式(I)において、A、Bは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基を示し、フェニル基、ナフチル基、フェンスレン基等から選ばれ、置換基としては、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子、メチル基、エチル基等の炭素数1～6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1～6のアルコキシ基；メトキシカルボニル基等の炭素数1～6のアルコキシ基を有するアルコキシカルボニル基；メトキシスルホニル基、エトキシスルホニル基等の炭素数1～6のアルコキシスルホニル基；シアノ基、アミノ基、ジメチルアミノ基、ニトロ基等があげられる。

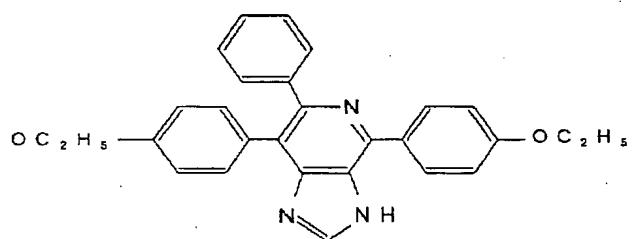
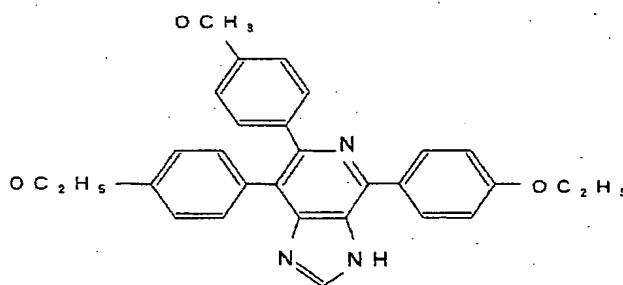
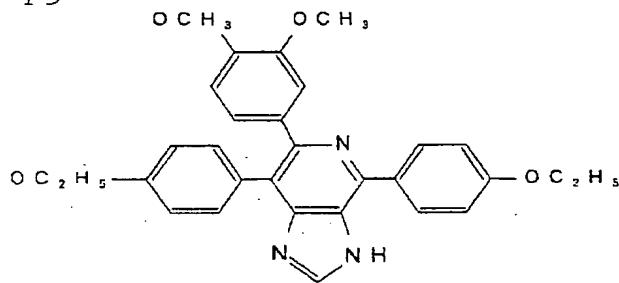
【0051】また、Yは、置換基を有していてもよい炭素原子で、置換基としては水素原子、シアノ基、或いは、次式で表されるアミド基：-CONH<sub>2</sub>、-CONHR、-COR'（式中、R、R'はフェニル基等の芳香族炭化水素基または置換されても良いアルキル基を示す。）、或いは、次式で表されるエステル基：-C(=O)OR（式中Rは、フェニル基等の芳香族炭化水素基または置換されても良いアルキル基を示す。）、或いは、1～28個の炭素原子を有するアルキル基、カルボキシル基、置換されてもよいフェニル基、ナフチル基、フェンントリル基等の芳香族炭化水素基；置換されてもよいチエニル基、ピロリル基、チアゾリル基、フリル基、オキサゾリル基、ベンゾチエニル基、ベンゾフラニル基、インドリル基、ピリジル基等の芳香族複素環基等があげられる。

【0052】これら一般式(I)で表される化合物の具体例として、化合物(1)～(11)の構造式を以下に例示する。

【0053】

【化8】

13



【0054】

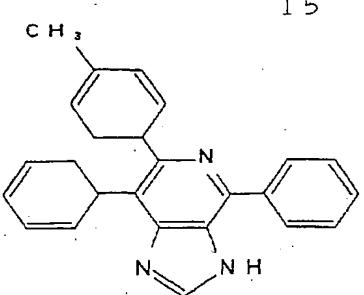
【化9】

30

(9)

特開2003-133072

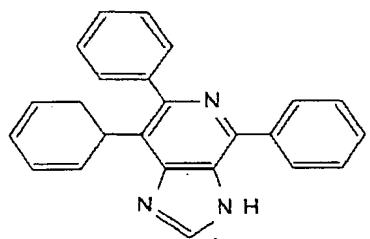
16



【0055】  
【化10】

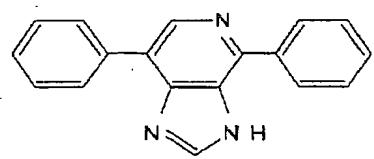
(4)

10



(5)

20



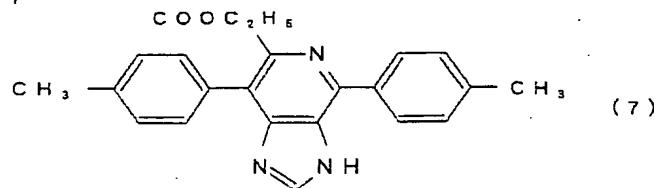
(6)

(10)

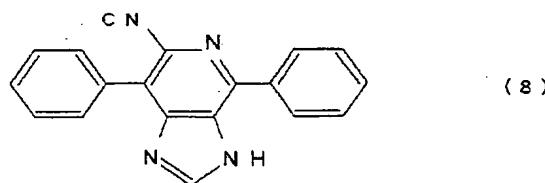
特開2003-133072

17

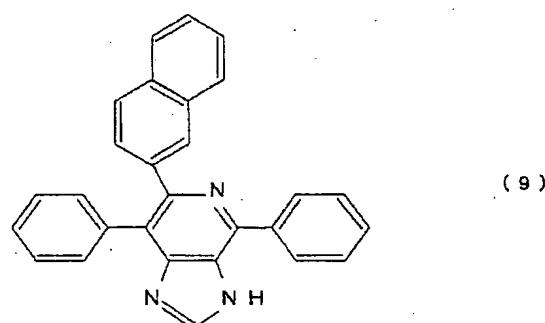
18



(7)



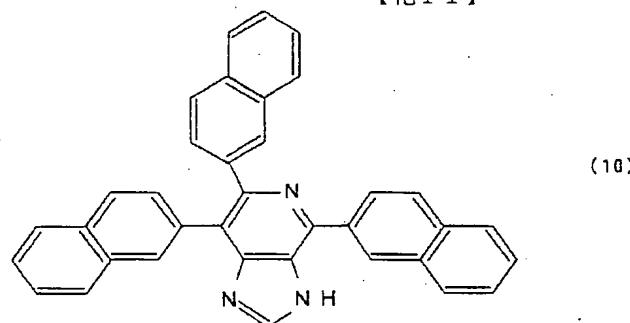
(8)



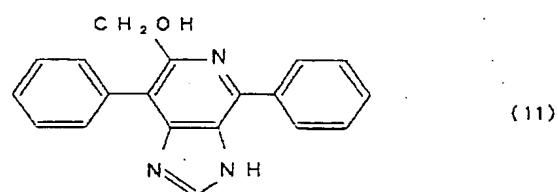
(9)

【0056】

\* \* 【化11】



(10)



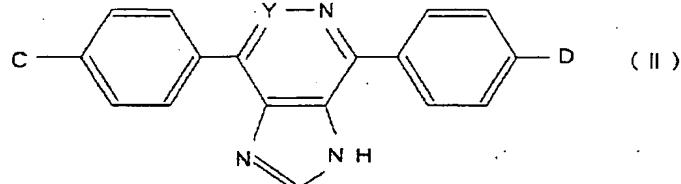
(11)

【0057】これらの化合物(1)～(11)はいずれも強い蛍光性を示し、発光層4の化合物として好適である。発光層4の膜厚は通常100～2000Å、好ましくは300～1000Åである。発光層4も正孔注入輸

19

送層3と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。真空蒸着法で形成した有機薄膜は長期間の放置の後に凝集して劣化することが良く見られるが本発明における有機発光化合物はこの点において優れている。

【0058】次に、本発明の有機EL発光素子の発光層4に含有される下記一般式(I1)で表される本発明の\*



【0061】一般式(I1)において、C、Dは、置換基を有していてもよい芳香族炭化水素基または置換基を有していてもよい複素環基または置換基を有していてもよいテロ原子を環内に含む芳香族基を示し、芳香族炭化水素基は、フェニル基、ナフチル基、フェナントレン基等から選ばれ、複素環基またはテロ原子を環内に含む芳香族基は、ベンゾチオフェン基、インドール基、ベンゾフラン基等から選ばれ、これらの置換基としては、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子、メチル基、エチル基等の炭素数1~6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基等の炭素数1~6のアルコキシ基、メトキシカルボニル基等の炭素数1~6のアルコキシ基を有するアルコキシカルボニル基、メトキシルホニル基、エトキシルホニル基等の炭素数1~6のアルコキシルホニル基、シアノ基、アミノ基、ジメチルアミノ基、ニトロ基等があげられる。

【0062】Yは、置換基を有していてもよい炭素原子で、置換基としては水素原子、シアノ基、或いは、次式※

20  
28個の炭素原子を有するアルキル基、カルボキシル基、置換されてもよいフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基等の芳香族炭化水素基；置換されてもよいチエニル基、ピロリル基、チアゾリル基、フリル基、オキサゾリル基、ベンゾチエニル基、ベンゾフラン基、インドリル基、ピリジル基等の芳香族複素環基等があげられる。

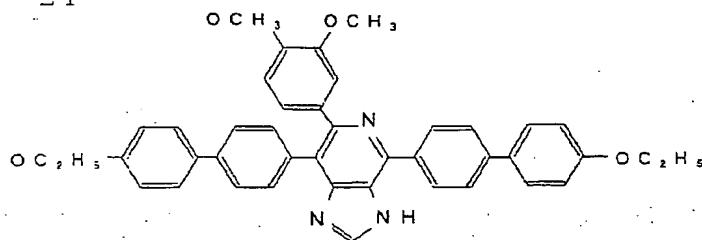
【0063】これら一般式(I1)で表される化合物の具体例として、化合物(12)~(23)の構造式を以下に示す。

【0064】

【化12】

(12)

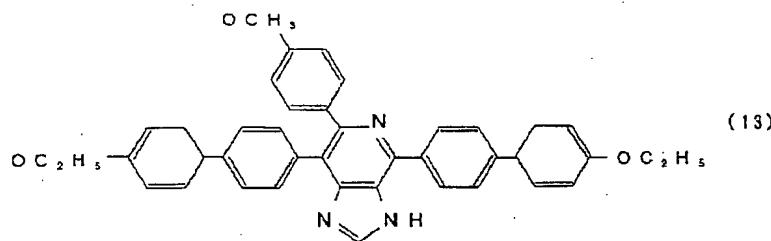
21



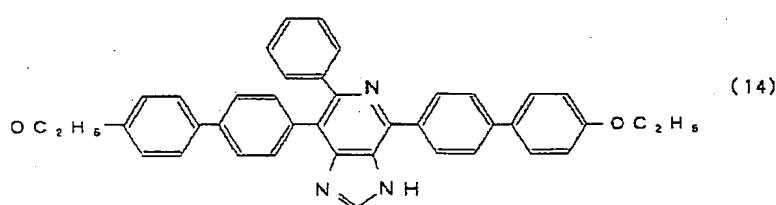
特開2003-133072

22

(12)



(13)



(14)

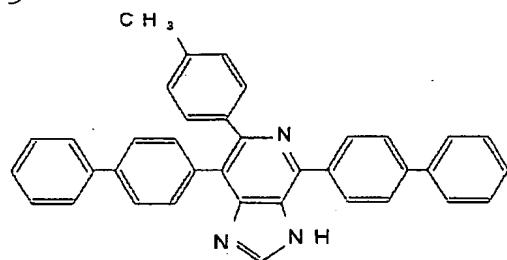
【0065】

\* \* 【化14】

( 1 3 )

特開2003-133072

23



24

( 15 )

(16)

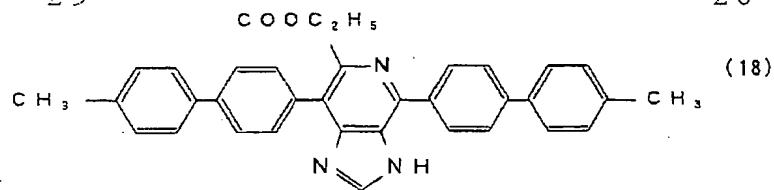
(17)

[0066]

\* \* 【化15】

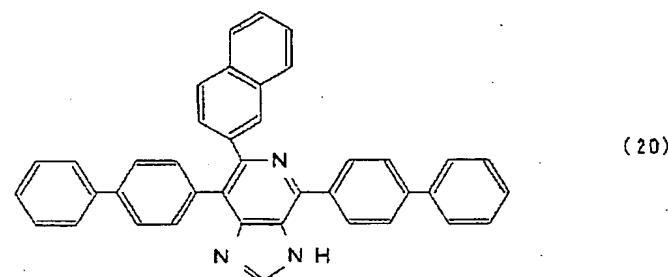
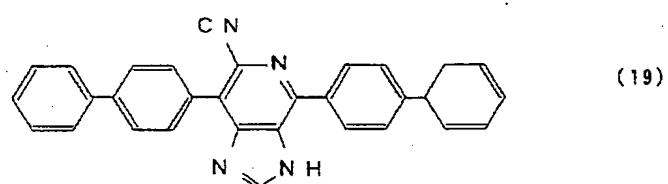
( 14 )

25



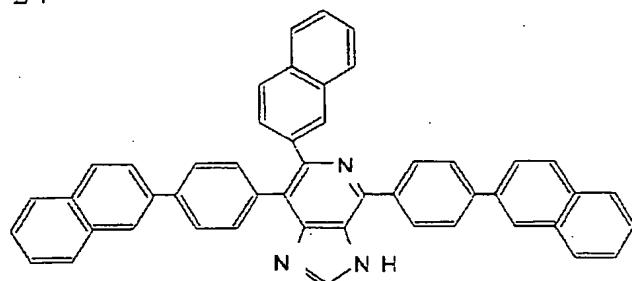
特開2003-133072

26

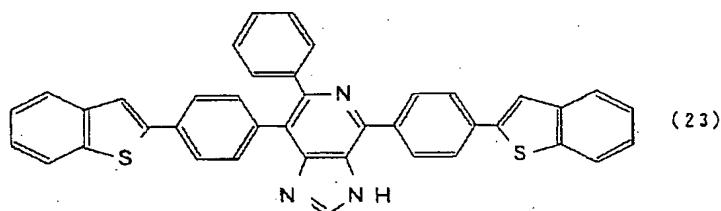
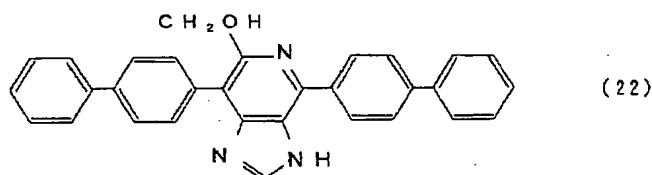


[ 0067 ]

\* 30 \* 【化 1 6】



(21)



【0068】これらの化合物(12)～(23)は、いずれも強い蛍光性を示し、発光層4の化合物として好適である。発光層4の膜厚は通常100～2000Å、好ましくは300～1000Åである。発光層4も正孔注入輸送層3と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が用いられる。真空蒸着法で形成した有機薄膜は長期間の放置の後に凝集して劣化することが良く見られるが本発明における有機発光化合物はこの点において優れており、かつ、単一の白色発光材料により低コストで作成できて、色味の経時変化がないという作用を有する。

【0069】よって、高効率で高い発光輝度で長時間安定して連続発光可能な、白色発光の有機エレクトロルミネッセンス発光素子が、単一の白色発光材料により低コストで作成できて、色味の経時変化がない。

【0070】次に、本発明の化合物の合成例を説明する。

30 \* 【0071】(合成例) 化合物(1)～(11)、化合物(12)～(23)の合成例を示すにあたり、ここでは代表して化合物(23)の合成方法の具体例を示す。

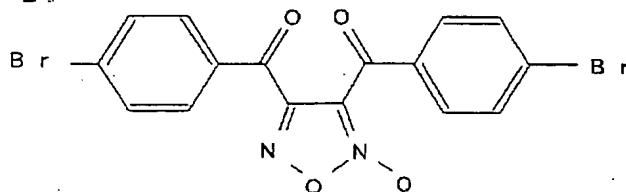
【0072】①N-オキシド体の合成：100mLの酢酸に溶解させた4-ブロモアセトフェノン(49.7g、0.25mol)に100mL酢酸と90mLの硝酸の混合溶液を加えた。亜硝酸ナトリウム(150mg)を室温で24時間攪拌後、水にあけ結晶化するまで攪拌した。吸引沪過し、残渣をCHCl<sub>3</sub>に溶かし、飽和NaHCO<sub>3</sub>水溶液で洗い、MgSO<sub>4</sub>で乾燥後、減圧下で溶媒を留去した。CHCl<sub>3</sub>で再結晶化して、N-オキシド体(46.3g、8.2%)を得た。

【0073】ここで、得られたN-オキシド体(2.1)の構造式及び特性値を示す。

【0074】

【化17】

29



30

(24)

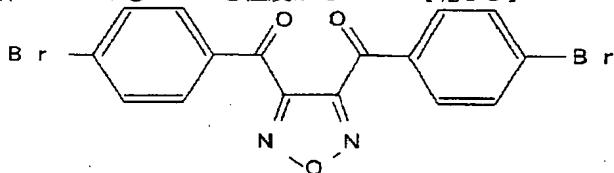
【0075】Colorless Prisms; mp 136-139°C (lit. 127-128°C)  
 IR (KBr)  $\text{cm}^{-1}$  1685, 1654, 1619, 1582, 1470, 1323  
 EI-MS (M<sup>+</sup>) 450, 452, 454  
 $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , ppm)  $\delta$  = 7.69-7.74 (m, 6H), 8.10 (d, 2H)  
 ②オキサジアゾール体の合成: 4.00 mol の  $\text{CH}_3\text{C}\equiv\text{N}$  に溶解させた  $\text{N}$ -オキシド体 (2.0 g, 0.05 mol) に酢酸 (7.0 ml)、無水酢酸 (2.0 ml) を加え、10分間攪拌後、12.0 g の  $\text{Zn}$  を温度が4\*

\* 0°C以上にならないように7回に分けて加えた。3時間後 TLCで原料の消失を確認し、 $\text{Zn}(\text{OAc})_2$ を沪別した。沪液を留去し、残渣を  $\text{CHCl}_3$  に溶解させ 10%  $\text{HCl}$  水溶液、飽和  $\text{NaHCO}_3$ 、飽和  $\text{NaCl}$  水溶液で洗い、 $\text{MgSO}_4$  で乾燥後、溶媒を留去した。  $\text{CHCl}_3$  で再結晶化後、目的とするオキサジアゾール体 (1.2.5 g, 6.5%) を得た。

【0076】ここで、得られたオキサジアゾール体 (25) の構造式及び特性値を示す。

【0077】

【化18】



(25)

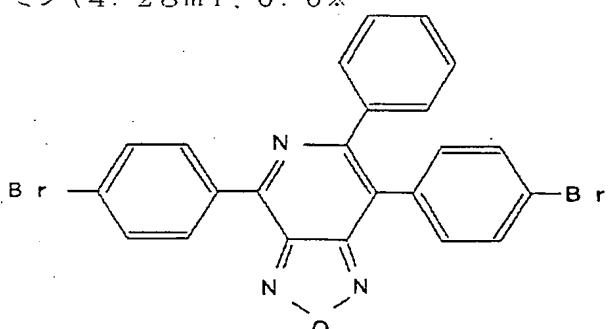
【0078】Colorless Prisms; mp 111-114°C (lit. 108-109°C)  
 IR (KBr)  $\text{cm}^{-1}$  1687, 1656, 1582, 1582, 1297, 1067  
 EI-MS (M<sup>+</sup>) 434, 436, 438  
 $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , ppm)  $\delta$  = 7.71 (d, 4H,  $J$  = 8.6 Hz), 7.99 (d, 4H,  $J$  = 8.6 Hz)  
 ③閉環反応 (反応後の構造): 2.00 mol の  $n\text{-BuO}$  に溶解させたオキサジアゾール体 (1.0, 0 g, 0.02 mol) にベンジルアミン (4.28 ml, 0.0\*

\* 4 mol) を加えた。130°Cで48時間加熱還流した。反応終了後、一旦  $n\text{-BuOH}$  を減圧下で留去し、残渣を  $\text{CHCl}_3$  に溶解させ 10%  $\text{HCl}$  水溶液、飽和  $\text{NaHCO}_3$ 、飽和  $\text{NaCl}$  水溶液で洗い、 $\text{MgSO}_4$  で乾燥後、溶媒を留去した。  $\text{CHCl}_3$  で再結晶化後、螢光を有する閉環体 (6.3 g, 6.2%) を得た。

【0079】ここで、得られた閉環体 (26) の構造式及び特性値を示す。

【0080】

【化19】



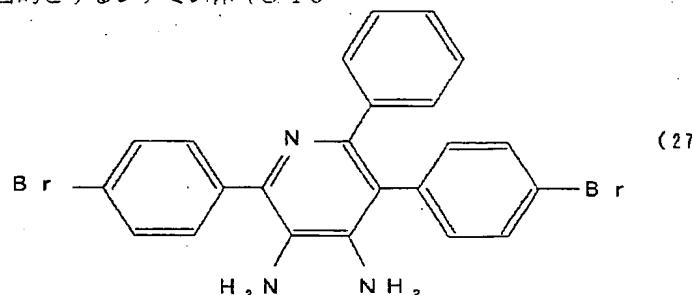
(26)

【0081】Orange needles; mp 160-163°C  
 IR (KBr)  $\text{cm}^{-1}$  1562, 1537, 1510, 1480, 1440, 1417, 1397, 1369

★EI-MS (M<sup>+</sup>) 505, 507, 509  
 $^1\text{H-NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , ppm)  $\delta$  = 7.32-7.42 (m, 5H), 7.49-7.56 (m, 4H), 7.73 (d, 2H), 8.64 (d, 2H)  
 ★50 ④ジアミン体 (化32) の合成: 3.0 mol の  $\text{EtOH}$  に

31

懸濁させた閉環体 (1.0 g, 0.002 mol) に還流下で  $\text{NaBH}_4$  (373 ml, 0.01 mol) を加えた。30分後、TLCより原料の消失を確認し、反応液を水にあけた。30分間攪拌後、析出してきた結晶を沪別し、水で3回洗った。減圧下で乾燥後、 $\text{EtOH}$ で再結晶し、ほぼ定量的に目的とするジアミン体 (8.40 g)



【0084】Colorless Prisms; mp 220-224°C

IR (KBr)  $\text{cm}^{-1}$  3438, 3364, 3052, 1426, 1157

EI-MS (M<sup>+</sup>) 493, 495, 497

$^1\text{H-NMR}$  (DMSO- $d_6$ , ppm)  $\delta$  = 4.0

1 (br, 2H), 5.06 (br, 2H), 7.06-7.14 (m, 7H), 7.52 (d, 2H), 7.

63-7.71 (m, 4H)

⑤イミダゾール体の合成: 10 ml のギ酸に溶解させた※

\* mg, 86%)を得た。

【0082】ここで、得られたジアミン体 (27) の構造式及び特性値を示す。

【0083】

【化20】

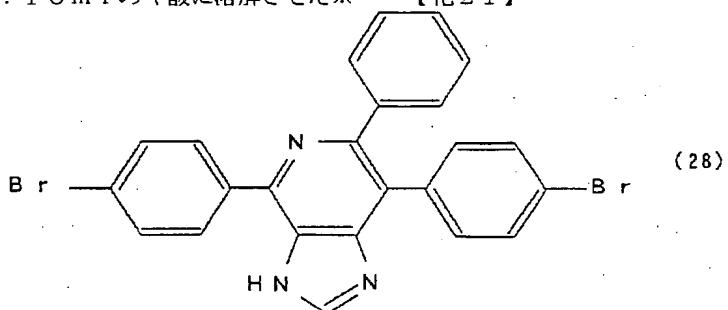
※ジアミン体 (200 mg, 0.40 mol) に触媒量の濃塩酸 (0.1 ml) を加え、24時間加熱還流した。

反応終了後、反応液を 100 ml の水にあけアンモニア水で塩基性にし、析出してきた結晶を沪別した。減圧下で乾燥後、THFで再結晶して、イミダゾール体 (1.2 mg, 70%)を得た。

【0085】ここで、得られたイミダゾール体 (28) の構造式及び特性値を示す。

【0086】

【化21】



【0087】Colorless Prisms; mp 242-245°C

IR (KBr)  $\text{cm}^{-1}$  3084, 1589, 1495, 1453, 1401, 1010

EI-MS (M<sup>+</sup>) 503, 505, 507

$^1\text{H-NMR}$  (DMSO- $d_6$ , ppm)  $\delta$  = 7.2

7-7.38 (m, 7H), 7.60 (d, 2H),

7.76 (d, 2H), 8.46 (s, 1H)

⑥カップリング反応: Ar 気流下、15 ml のベンゼンに溶解させたイミダゾール体 (300 mg, 0.594 mmol) に 2M 7 ml の  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  水溶液、Pd (p★

★ $\text{Ph}_3\text{P}_4$  (77 mg) を加え、続いて 7 ml の  $\text{Et}_3\text{O}^+$  に溶解させた 2-ベンゾ「b」チエニルボロン酸 (22.0 mg, 1.48 mmol) を加えた。加熱還流下で 24 時間反応後 TLC にて原料の消失を確認し、反応液を

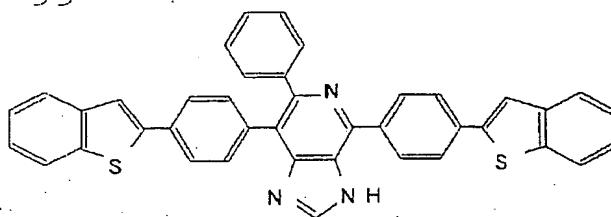
40 水にあけた。析出した結晶を識別して、減圧下で乾燥後、THFにて再結晶して目的とするカップリング体 (250 mg, 69%) である化合物 (23) を得た。

【0088】ここで、化合物 (23) の構造式を今一度示すと共に特性値を示す。

【0089】

【化22】

33



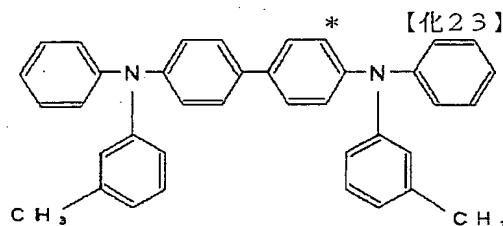
(23)

34

【0090】 Colorless Prisms; mp 400°C; FAB-MS (M<sup>+</sup>) 612  
 1H (KBr) cm<sup>-1</sup> 3398, 3090, 1481, 1435, 1187, 1098  
 なお、化合物(1)～(11)、化合物(12)～(22)についても同様な方法を用いることで合成は可能であり、ここでは特に記さない。

【0091】 次に、本発明の実施例を説明する。

【0092】



(29)

【0094】 次に有機発光層として、例示化合物(1)を0.1～0.2 nm/secの蒸着速度で50 nm蒸着し、以後Al-Liを真空中で連続して蒸着し素子を作製した。

【0095】 Al-LiはLiの濃度15 at%のAl-Li合金をタングステン製のボードより0.5 nm/secの蒸着速度により200 nmの膜厚で形成し有機エクトロルミネッセンス素子を完成した。このとき初期輝度100 cd/m<sup>2</sup>に対する変換効率は1.51 m/Wであった。次に完成した有機エクトロルミネッセンス素子は乾燥窒素中定電流駆動を行い、素子の連続駆動試験を行った。駆動条件は1.5 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度500 cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧9.8 Vであった。輝度の測定はトプロン社製のBM-8ルミネントメーターにより測定した。また浜松フォトニクス社製のマルチチャンネルアナライザで発光スペクトルを測定し、メインの発光ピークが470 nm付近にあることを確認した。発光色は青色であった。素子の輝度は780時間連続駆動後に半減した。

【0096】 (実施例2) 本発明の実施例2として、ガラス基板上にITOが成膜された基板を、中性洗剤、流水、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した。ITO付の基板は旭硝子(株)社製のITOガラス(抵抗値=10 Ω/sq, 膜厚20 nm)を使用した。正孔注入層としてTPD(29)を真空蒸着法により50 nmの膜厚で成膜した。蒸着時の真空度は3×10<sup>-6</sup> Torrであった。

【0097】 次に有機発光層として、例示化合物(1)

\* 【実施例】 (実施例1) 本発明の実施例1として、ガラス基板上にITOを150 nmスパッタ法で成膜した基板を、中性洗剤、流水、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した後、正孔注入層として以下に構造式を示すTPD(29)を真空蒸着法により50 nmの膜厚で成膜した。蒸着時の真空度は3×10<sup>-6</sup> Torrであった。

【0093】

【化23】

※1) を0.1～0.2 nm/secの蒸着速度で50 nm蒸着し、以後Al-Liを真空中で連続して蒸着し素子を作製した。Al-LiはLiの濃度15 at%のAl-Li合金をタングステン製のボードより0.5 nm/secの蒸着速度により200 nmの膜厚で形成し有機エクトロルミネッセンス素子を完成した。このとき初期輝度100 cd/m<sup>2</sup>に対する変換効率は1.71 m/Wであった。次に完成した有機エクトロルミネッセンス素子は乾燥窒素中定電流駆動を行い、素子の連続駆動試験を行った。駆動条件は1.0.2 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度500 cd/m<sup>2</sup>、初期駆動電圧は8.2 Vであった。輝度の測定はトプロン社製のBM-8ルミネントメーターにより測定した。また浜松フォトニクス社製のマルチチャンネルアナライザで発光スペクトルを測定し、メインの発光ピークが460 nmと600 nm付近にあることを確認した。発光色は白色であった。素子の輝度は830時間連続駆動後に半減した。このときメインの発光ピークのピーク位置、相対強度共に変化がなかった。

【0098】 (実施例3) 本発明の実施例3として、ガラス基板上にITOが成膜された基板を、中性洗剤、流水、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した。ITO付の基板は旭硝子(株)社製のITOガラス(抵抗値=10 Ω/sq, 膜厚20 nm)を使用した。正孔注入層としてTPD(29)を真空蒸着法により50 nmの膜厚で成膜した。蒸着時の真空度は3×10<sup>-6</sup> Torrであった。

【0099】 次に有機発光層として、例示化合物(1)

35

5)を0.1~0.2 nm/secの蒸着速度で50 nm蒸着し、以後Al-Liを真空中で連続して蒸着し素子を作製した。Al-LiはLiの濃度15at%のAl-Li合金をタンクステン製のボードより0.5 nm/secの蒸着速度により200 nmの膜厚で形成し有機エクトロルミネッセンス素子を完成した。このとき初期輝度100 cd/m<sup>2</sup>に対する変換効率は1.8 lm/Wであった。次に完成した有機エクトロルミネッセンス素子は定電流駆動を行い、素子の連続駆動試験を行った。駆動条件は9.5 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度500 cd/m<sup>2</sup>、初期駆動電圧は8.6 Vであった。輝度の測定はトプコン社製のBM-8ルミネセントメーターにより測定した。また浜松フォトニクス社製のマルチチャンネルアナライザで発光スペクトルを測定し、メインの発光ピークが430 nmと560 nm付近\*であることを確認した。発光色は白色であった。素子の輝度は880時間連続駆動後に半減した。このときメインの発光ピークのピーク位置、相対強度共に変化がなかった。

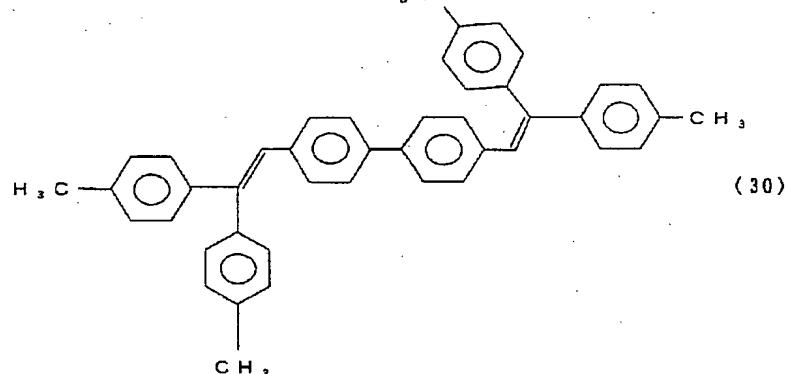
【0100】(比較例1)ガラス基板上にITOが成膜された基板を、中性洗剤、流水、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した後、正孔注入層としてTPD(29)を真空蒸着法により50 nmの膜厚で成膜した。蒸着時の真空中度は3×10<sup>-6</sup> Torrであった。

10 発光層として以下に構造式を示しているBPVBi(30)、カソードはAl-Liの順に真空中で連続して素子を作製した。

【0101】

【化24】

H<sub>3</sub>C



【0102】ITO付の基板は旭硝子(株)社製のITOガラス(抵抗値=10Ω/sq, 膜厚220 nm)を使用した。TPDはトリケミカル研究所より、BPVBiは出光興産より購入したものを使用した。TPD、BPVBiは0.1~0.2 nm/secの蒸着速度によりタンタル製の蒸着ボードより蒸着し、それぞれ50 nm, 40 nmの膜厚を順に積層した。Al-LiはLiの濃度15at%のAl-Li合金をタンクステン製のボードより0.5 nm/secの蒸着速度により200 nmの膜厚で形成し有機エクトロルミネッセンス素子を完成した。このとき初期輝度100 cd/m<sup>2</sup>に対する変換効率は1.1 lm/Wであった。発光色は青色であった。次に完成した有機エクトロルミネッセンス素子は定電流駆動を行い、素子の連続駆動試験を行った。駆動条件は10.5 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度5

30 \*00 cd/m<sup>2</sup>、初期駆動電圧は9.1 Vであった。輝度の測定はトプコン社製のBM-8ルミネセントメーターにより測定した。連続駆動試験を行うと、素子の輝度は539時間連続駆動後に半減した。

【0103】(比較例2)ガラス基板上にITOが成膜された基板を、中性洗剤、流水、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した後、正孔注入層としてTPD(29)を真空蒸着法により50 nmの膜厚で成膜した。蒸着時の真空中度は3×10<sup>-6</sup> Torrであった。発光層として以下に構造式を示しているDPVBi(31)、カソードはAl-Liの順に真空中で連続して素子を作製した。

40 【0104】

【化25】

36

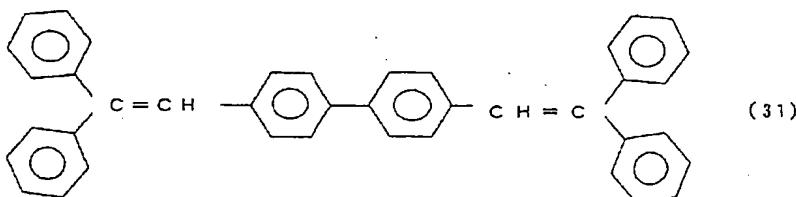
\*にあることを確認した。発光色は白色であった。素子の輝度は880時間連続駆動後に半減した。このときメインの発光ピークのピーク位置、相対強度共に変化がなかった。

【0100】(比較例1)ガラス基板上にITOが成膜された基板を、中性洗剤、流水、アセトン、イソプロピルアルコールで超音波洗浄した後、正孔注入層としてTPD(29)を真空蒸着法により50 nmの膜厚で成膜した。蒸着時の真空中度は3×10<sup>-6</sup> Torrであった。

10 発光層として以下に構造式を示しているBPVBi(30)、カソードはAl-Liの順に真空中で連続して素子を作製した。

【0101】

【化24】



【0105】ITO付の基板は旭硝子(株)社製のITO★50★0ガラス(抵抗値=10Ω/sq, 膜厚220 nm)を

使用した。TPDはトリケミカル研究所より、DPVB<sub>i</sub>は出光興産より購入したものを使用した。TPD、DPVB<sub>i</sub>は0.1～0.2 nm/secの蒸着速度によりタンタル製の蒸着ボードより蒸着し、それぞれ40 nm、75 nmの膜厚を順に積層した。Al-LiはLiの濃度15 at%のAl-Li合金をタングステン製のボードより0.15 nm/secの蒸着速度により200 nmの膜厚で形成し有機エクトロルミネッセンス発光素子を完成した。このとき初期輝度100 cd/m<sup>2</sup>に対する変換効率は0.81 m/Wであった。発光色は青色であった。次に完成した有機エクトロルミネッセンス素子は定電流駆動を行い、素子の連続駆動試験を行った。駆動条件は10.8 mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度500 cd/m<sup>2</sup>、初期駆動電圧は10.1 Vであった。輝度の測定はトプコン社製のBM-8ルミネセンスマーターにより測定した。連続駆動試験を行うと、素子の輝度は625時間連続駆動後に半減した。また発光の色味が緑味に変化していた。

## 【0106】

【発明の効果】以上のように本発明によれば青色及び白色発光の高効率な有機エクトロルミネッセンス発光素子

10

20

が得られ、かつその連続駆動安定性が大幅に向上し、初期輝度の減衰が長時間にわたって緩和されるという有利な効果が得られる。

【0107】また、単一材料で青色発光及び白色発光が得られ、その色味の経時変化がないという効果を有する。

【0108】そして、青色発光や単一発光材料での白色発光が可能な高効率な有機エクトロルミネッセンス発光素子であり、単一の材料のため低コストで作製でき、高い発光輝度で長時間安定して連続発光が可能な有機エクトロルミネッセンス発光素子を提供することができる。

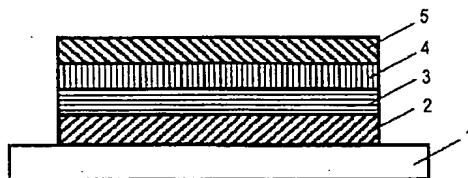
## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態における有機エクトロルミネッセンス発光素子の要部断面図

## 【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 陰極

【図1】



## フリントページの続き

(71)出願人 501415590

添田 康彦

福岡県筑紫郡那珂川町片縄605-34

(72)発明者 又賀 駿太郎

福岡県大野城市大池2丁目17番5号

(72)発明者 ティーマン ティース

福岡県春日市春日公園2の10春日公園住宅

26の103

(72)発明者 添田 康彦

福岡県筑紫郡那珂川町片縄605-34

(72)発明者 金子 信一郎

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(72)発明者 八浪 竜一

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(72)発明者 小松 隆宏

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(72)発明者 坂上 恵

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 DB03

4C065 AA05 BB06 CC01 DD03 EE02

HH04 HH08 KK01 LL01 PP03

PP06